

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-348203

(43)Date of publication of application : 18.12.2001

(51)Int.Cl.

C01B 3/32
B01J 23/60
C01B 3/40
H01M 8/06
H01M 8/10

(21)Application number : 2000-165093

(71)Applicant : NISSAN MOTOR CO LTD

(22)Date of filing : 01.06.2000

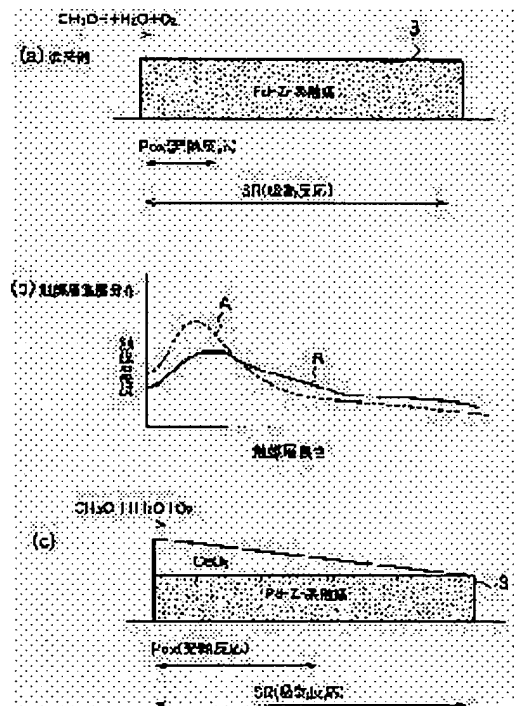
(72)Inventor : HAGA FUMIHIRO
KANEKO HIROAKI

(54) DEVICE FOR REFORMING FUEL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a device for reforming fuel, which has reduced unreacted residual carbon and is capable of suppressing the production of carbon monoxide thereby being made compact in structure and has high performance.

SOLUTION: The fuel reforming device 3 houses a fuel reforming catalyst for accelerating the reforming reaction of a fuel gas and produces a hydrogen enriched reformed gas by the reforming reaction of the supplied fuel gas, steam and oxygen. As for the reforming catalyst, a metal oxide material therein is controller as that its content on the side where the fuel gas is introduced is larger than that on the side where the reformed gas is discharged. Thus the partial oxidation reaction in the introducing side of the fuel gas is delayed to suppress the rapid temperature rising in this side, thereby reducing the concentration of carbon monoxide.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

26.03.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

* NOTICES *

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] fuel gas, a steam, and oxygen to the reforming reaction which holds the fuel reforming catalyst which promotes the reforming reaction of fuel gas, and is supplied -- hydrogen -- the fuel reformer which is a fuel reformer which manufactures rich reformed gas, and is characterized by adjusting so that the side which introduces said fuel gas may increase more than the side to which the abundance of the metallic-oxide ingredient in it discharges said reformed gas to said reforming catalyst.

[Claim 2] It is the fuel reformer according to claim 1 characterized by for said fuel reforming catalyst being a monolith type, and mixing said metallic-oxide ingredient so that the direction of the side which introduces fuel gas rather than the discharge side of reformed gas may increase.

[Claim 3] Said fuel reforming catalyst is a fuel reformer according to claim 1 characterized by having arranged in order with many mixing rates of said metallic-oxide ingredient to the side which discharges reformed gas from the side which is a monolith type and introduces fuel gas for two or more sorts of monolith type catalysts of which the coat of the reforming catalyst from which the mixing rate of said metallic-oxide ingredient differs is carried out to catalyst support, and it consists.

[Claim 4] fuel gas, a steam, and oxygen to the reforming reaction which holds the fuel reforming catalyst which promotes the reforming reaction of fuel gas, and is supplied -- hydrogen -- the fuel reformer which is the fuel reformer which manufactures rich reformed gas, and said fuel reforming catalyst is a monolith type, and is characterized by to carry out a coat so that the direction of abundance of the side which introduces said fuel gas into the front face of said reforming catalyst by which the coat was carried out to catalyst support rather than the side which discharges said reformed gas for a metallic-oxide ingredient may increase.

[Claim 5] The fuel reformer according to claim 4 characterized by having arranged in order with much abundance of said metallic-oxide ingredient to the side which discharges reformed gas from the side into which the metallic-oxide ingredient of an amount which is different on the front face of the reforming catalyst which carried out the coat to said catalyst support introduces fuel gas for two or more sorts of monolith type catalysts by which the coat was carried out.

[Claim 6] Said metallic-oxide ingredient is a fuel reformer according to claim 1 to 5 characterized by being an oxygen occlusion ingredient.

[Claim 7] Said oxygen occlusion ingredient is a fuel reformer according to claim 6 characterized by being a multiple oxide containing cerium oxide CeO₂ or Cerium Ce.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-348203

(P2001-348203A)

(43) 公開日 平成13年12月18日 (2001. 12. 18)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テームコード [*] (参考)
C 0 1 B	3/32	C 0 1 B	3/32 A 4 G 0 4 0
B 0 1 J	23/60	B 0 1 J	23/60 M 4 G 0 6 9
C 0 1 B	3/40	C 0 1 B	3/40 5 H 0 2 6
H 0 1 M	8/06	H 0 1 M	8/06 G 5 H 0 2 7
	8/10		8/10

審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願2000-165093 (P2000-165093)

(22) 出願日 平成12年6月1日 (2000. 6. 1)

(71) 出願人 000003997

日産自動車株式会社

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地

(72) 発明者 羽賀 史浩

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

(72) 発明者 金子 浩昭

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

(74) 代理人 100083806

弁理士 三好 秀和 (外8名)

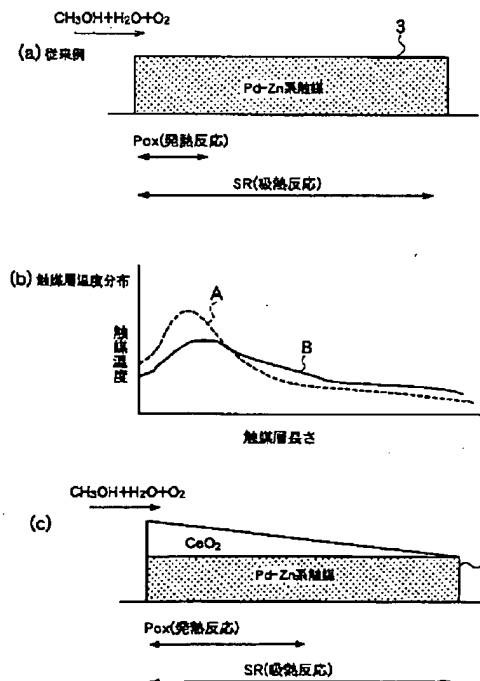
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料改質装置

(57) 【要約】

【課題】 未反応の残留炭化物が少なく、一酸化炭素の生成量を低く抑えることができ、その結果として、コンパクトにして高性能化が可能な燃料改質装置を実現する。

【解決手段】 燃料改質装置3は、燃料ガスの改質反応を促進する燃料改質触媒を収容していて、供給される燃料ガスと水蒸気と酸素から改質反応によって水素リッチな改質ガスを製造する。そして改質触媒にはその中の金属酸化物材料が改質ガスを排出する側よりも燃料ガスを導入する側の方が多くなるように存在割合を調整している。これにより、燃料ガスの導入側での部分酸化反応を遅らせてその部分での急激な温度上昇を抑えることができ、一酸化炭素濃度を低減することができる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 燃料ガスの改質反応を促進する燃料改質触媒を収容し、供給される燃料ガスと水蒸気と酸素から改質反応によって水素リッチな改質ガスを製造する燃料改質装置であって、前記改質触媒にその中の金属酸化物材料の存在割合が前記改質ガスを排出する側よりも前記燃料ガスを導入する側の方が多くなるように調整したことを特徴とする燃料改質装置。

【請求項2】 前記燃料改質触媒はモノリス型であり、前記金属酸化物材料は改質ガスの排出側よりも燃料ガスを導入する側の方が多くなるように混入されていることを特徴とする請求項1に記載の燃料改質装置。

【請求項3】 前記燃料改質触媒はモノリス型であり、前記金属酸化物材料の混入割合が異なる改質触媒が触媒担体にコートされて成る複数種のモノリス型触媒を、燃料ガスを導入する側から改質ガスを排出する側へ前記金属酸化物材料の混入割合の多い順に配置したことを特徴とする請求項1に記載の燃料改質装置。

【請求項4】 燃料ガスの改質反応を促進する燃料改質触媒を収容し、供給される燃料ガスと水蒸気と酸素から改質反応によって水素リッチな改質ガスを製造する燃料改質装置であって、前記燃料改質触媒はモノリス型であり、触媒担体にコートされた前記改質触媒の表面に金属酸化物材料を前記改質ガスを排出する側よりも前記燃料ガスを導入する側の方が存在割合が多くなるようにコートしたことを特徴とする燃料改質装置。

【請求項5】 前記触媒担体にコートした改質触媒の表面に異なる量の金属酸化物材料がコートされた複数種のモノリス型触媒を、燃料ガスを導入する側から改質ガスを排出する側へ前記金属酸化物材料の存在割合の多い順に配置したことを特徴とする請求項4に記載の燃料改質装置。

【請求項6】 前記金属酸化物材料は、酸素吸蔵材料であることを特徴とする請求項1～5のいずれかに記載の燃料改質装置。

【請求項7】 前記酸素吸蔵材料は、酸化セリウムCeO₂又はセリウムCeを含む複合酸化物であることを特徴とする請求項6に記載の燃料改質装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

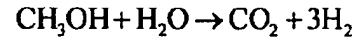
【発明の属する技術分野】本発明は、炭化水素やメタノールなどの燃料を改質して水素リッチな改質ガスを製造するための燃料改質装置に関し、詳しくは、固体高分子型燃料電池、リン酸型燃料電池などの燃料電池の燃料ガスの製造に適する燃料改質装置に関する。

【0002】

【従来の技術】一般に、メタノールその他の炭化水素と水とから水素リッチな改質ガスを製造するには、以下の化学反応式1で示される水蒸気改質反応を利用する。

【0003】

【化1】

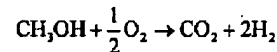


この水蒸気改質反応は吸熱反応であるため、燃料改質装置にバーナやヒータなどを設けて加熱を行い、改質反応に必要な熱量を供給しなければならない。

【0004】近年、このような燃料改質装置を車載型燃料電池を考慮したシステムへ適用することが検討されているが、燃料改質装置の起動性、応答性、コンパクト化が大きな課題となっている。それを解決する有効な方式として、吸熱反応である化学反応式1の水蒸気改質反応と、発熱反応である次の化学反応式2の部分酸化反応とを同時に行わせるオートサーマル改質が研究されている。

【0005】

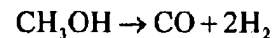
【化2】



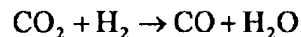
ところが、改質触媒に燃料と水と空気又は酸素を供給して上記のオートサーマル改質を行わせる場合、化学反応式2の部分酸化反応の反応速度が化学反応式1の水蒸気改質反応の反応速度に比べて速いため、触媒層の燃料ガスの導入側で高温の領域が存在してしまう。そしてこの触媒層における高温領域では、次の化学反応式3の分解反応や、化学反応式4の逆シフト反応が起きることにより、一酸化炭素(CO)濃度が高くなってしまう。

【0006】

【化3】



【化4】



固体高分子型燃料電池では、排出CO濃度を数十ppm以下に抑える必要があり、またリン酸型燃料電池ではそれを1%以下に抑える必要がある。このため、上述した燃料改質装置をリン酸型燃料電池などの燃料製造装置として適用するためには、CO除去装置を大型にする必要があるという問題が生じてしまう。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】上述したように、化学反応式1の水蒸気改質反応だけを行わせる燃料改質装置の場合、その吸熱反応に必要な熱量を外部から供給する必要があるため、車載型燃料電池の燃料製造装置として適用するには、小型化、高性能化の点で対応が難しい問題点があった。

【0008】また上述したオートサーマル改質を行う燃料改質装置は有望ではあるが、上述したように改質触媒の燃料ガス導入側に高温の領域が発生し、その領域で一酸化炭素濃度が高くなり、大型のCO除去装置を必要と

する問題点があった。

【0009】本発明はこのような従来の技術的課題を解決するためになされたもので、未反応の残留炭化物が少なく、一酸化炭素の生成量を低く抑えることができ、その結果として、燃料電池システムに組み込む場合にそのシステム全体がコンパクトにして高性能化できる燃料改質装置を提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】請求項1の発明は、燃料ガスの改質反応を促進する燃料改質触媒を収容し、供給される燃料ガスと水蒸気と酸素から改質反応によって水素リッチな改質ガスを製造する燃料改質装置であって、前記改質触媒にその中の金属酸化物材料の存在割合が前記改質ガスを排出する側よりも前記燃料ガスを導入する側の方が多くなるように調整したものである。

【0011】請求項2の発明は、請求項1の燃料改質装置において、前記燃料改質触媒をモノリス型とし、前記金属酸化物材料を改質ガスの排出側よりも燃料ガスを導入する側の方が多くなるように混入したものである。

【0012】請求項3の発明は、請求項1の燃料改質装置において、前記燃料改質触媒をモノリス型とし、前記金属酸化物材料の混入割合が異なる改質触媒が触媒担体にコートされて成る複数種のモノリス型触媒を、燃料ガスを導入する側から改質ガスを排出する側へ前記金属酸化物材料の混入割合の多い順に配置したものである。

【0013】請求項4の発明は、燃料ガスの改質反応を促進する燃料改質触媒を収容し、供給される燃料ガスと水蒸気と酸素から改質反応によって水素リッチな改質ガスを製造する燃料改質装置であって、前記燃料改質触媒をモノリス型とし、触媒担体にコートされた前記改質触媒の表面に金属酸化物材料を前記改質ガスを排出する側よりも前記燃料ガスを導入する側の方が存在割合が多くなるようにコートしたものである。

【0014】請求項5の発明は、請求項4の燃料改質装置において、前記触媒担体にコートした改質触媒の表面に異なる量の金属酸化物材料がコートされた複数種のモノリス型触媒を、燃料ガスを導入する側から改質ガスを排出する側へ前記金属酸化物材料の存在割合の多い順に配置したものである。

【0015】請求項6の発明は、請求項1～5の燃料改質装置において、前記金属酸化物材料を酸素吸蔵材料としたものである。

【0016】請求項7の発明は、請求項6の燃料改質装置において、前記酸素吸蔵材料を酸化セリウム CeO_2 又はセリウム Ce を含む複合酸化物としたものである。

【0017】

【発明の効果】請求項1～7の発明の燃料改質装置では、供給される燃料ガス、水蒸気及び酸素に対して燃料改質触媒の作用下に水蒸気改質反応と部分酸化反応とを起こさせることによって水素リッチな改質ガスを製造す

る。

【0018】そして改質触媒に、その中の金属酸化物材料の存在割合が改質ガスを排出する側よりも燃料ガスを導入する側の方が多くなるように調整したことにより、燃料ガスの導入側での部分酸化反応を遅らせてその部分での急激な温度上昇を抑えることができ、一酸化炭素濃度を低減することができる。

【0019】さらに、改質触媒に混入する、あるいはその表面にコートする金属酸化物材料を酸素吸蔵材料、例えば、酸化セリウム CeO_2 又はセリウム Ce を含む複合酸化物とすることによって燃料ガスの導入側で導入された酸素の一部を吸蔵することができ、部分酸化反応を遅らせてその部分での急激な温度上昇を効果的に抑えることができ、一酸化炭素濃度を低減することができる。

【0020】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態を図に基づいて詳説する。図1は本発明の第1の実施の形態の燃料改質装置を示している。この実施の形態の燃料改質装置は、メタノールと水とを混合して気化させた混合蒸気が供給される燃料供給路1、燃料酸化用空気（酸素）が供給される空気供給路2、そしてパラジウム系触媒と金属酸化物材料である酸素吸蔵材料としての酸化セリウム CeO_2 とが充填された触媒層3から構成されている。そして燃料供給路1からのメタノールと水との混合蒸気は空気供給路2からの空気と混合されて原料ガスとされ、触媒層3における水蒸気改質反応と部分酸化反応とに供される。

【0021】触媒層3に充填されたパラジウム系触媒は、耐熱性の高い酸化ジルコニウムに硝酸パラジウムと硝酸亜鉛を含浸、乾燥、焼成することによって調整したものである。触媒層3には、原料ガス導入側は改質ガス排出側よりも酸化セリウムの存在割合が高くなるように、パラジウム系触媒と酸化セリウムとが混合充填されている。

【0022】これにより、触媒層3の原料ガス導入側は、従来の触媒では発熱反応である部分酸化反応が速いために狭い範囲に極端な高温領域が生じてしまっていたのが、本実施の形態の場合には、導入される酸素の一部が酸化セリウムに吸蔵され、また改質触媒の存在割合が原料導入側で少ないために部分酸化反応を遅らせることができ、狭い範囲に極端な高温領域を生じることがない。これにより、生成する改質ガス中の一酸化炭素の濃度を低く抑えることができる。

【0023】図2(a)は、従来の燃料改質装置を示している。従来の燃料改質装置の場合、改質触媒（パラジウム Pb -亜鉛 Zn 系触媒）のみで、金属酸化物材料は混入されていない。そして改質触媒は、触媒層3内における原料ガスの流れに沿った各部で同じ量にしている。

【0024】図2(b)に示すように、このような従来例の構造の場合、改質触媒の存在割合は触媒層の各部で

一様であり、金属酸化物材料が混入されていないため、原料ガス ($\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O} + \text{O}_2$) の導入側で部分酸化反応 (Pox : 発熱反応) が急激に起こり、水蒸気改質反応 (SR : 吸熱反応) は比較的緩やかに起こるので、触媒層3内での温度分布は曲線Aようになる。

【0025】これに対して、本実施の形態の場合には、図2(c)に示すようにパラジウムPb-亜鉛Zn系触媒に対して酸化セリウムを混合し、しかもその存在割合を原料ガスの導入側で多くし、改質ガスの排出側で少なくしたので、同図(b)に曲線Bで示すように、触媒層3の原料ガスの導入側で部分酸化反応 (Pox) が急激に起こるのを抑え、より広い範囲で部分酸化反応が起こるように制御でき、触媒層3内の下流側 (改質ガスの排出側) まで広く温度上昇させることができ、水蒸気改質反応も広い範囲で促進させることができる。

【0026】そしてこれにより、改質ガスのCO濃度を効果的に低減することができ、当該燃料改質装置の後段に大型CO除去装置を設ける必要がなくなり、これを燃料供給装置とする燃料電池システムの構成をコンパクト化できるのである。

【0027】次に、本発明の第2の実施の形態の燃料改質装置を、図3に基づいて説明する。第2の実施の形態の燃料改質装置は、図1に示した第1の実施の形態と同様の燃料供給路1、空気供給路2、そしてパラジウム系触媒と酸化セリウムとがコートされた第1ハニカム触媒4、第2ハニカム触媒5、第3ハニカム触媒6を収容した燃料改質部7から構成されている。

【0028】燃料改質部7の第1ハニカム触媒4、第2ハニカム触媒5、第3ハニカム触媒6はいずれも、ハニカム触媒担体にパラジウム系触媒と酸素吸蔵金属材料である酸化セリウムとの混合物をコートした構造である。

【0029】パラジウム系触媒には、耐熱性の高い酸化ジルコニウムに硝酸パラジウムと硝酸亜鉛を含浸、乾燥、焼成することにより調整した。そしてハニカム触媒担体にこのパラジウム系触媒と酸化セリウムとの適当な割合の混合物をコートしてハニカム触媒を製造した。また第1、第2、第3のハニカム触媒4、5、6それぞれは、パラジウム系触媒と酸化セリウムとの混合割合を違えてある。すなわち、原料ガスの導入側の第1ハニカム触媒4は酸化セリウムの混合割合が高く、改質ガスの排出側のハニカム触媒ほど酸化セリウムの混合割合を低くするようにしている。

【0030】この第2の実施の形態の燃料改質装置であっても、図1に示した第1の実施の形態と同様の作用効果を奏する。すなわち、パラジウムPb-亜鉛Zn系触媒に対して酸化セリウムを混合割合が、原料ガスの導入側で多く、改質ガスの排出側で少ないので、燃料改質部7の原料ガスの導入側で部分酸化反応 (Pox) が急激に起こるのを抑え、より広い範囲で部分酸化反応が起こるように制御でき、燃料改質部7内の下流側まで広く温

度上昇させることができ、水蒸気改質反応も広い範囲で促進させることができる。そしてこれにより、改質ガスのCO濃度を効果的に低減することができ、当該燃料改質装置の後段に大型のCO除去装置を設ける必要がなくなり、これを燃料供給装置とする燃料電池システムの構成をコンパクト化できる。

【0031】次に、本発明の第3の実施の形態の燃料改質装置を、図4に基づいて説明する。第3の実施の形態は、触媒層3の構造に特徴を有する。この触媒層3はハニカム触媒であり、ハニカム触媒担体にパラジウム系触媒をコートし、さらにその表面に酸素吸蔵金属材料である酸化セリウムをコートした構造である。

【0032】パラジウム系触媒には、耐熱性の高い酸化ジルコニウムに硝酸パラジウムと硝酸亜鉛を含浸、乾燥、焼成することにより調整した。またこのハニカム触媒層3は、一様な塗膜のパラジウム系触媒の表面に、酸化セリウムの塗膜を原料ガスの導入側では厚く、改質ガスの排出側ほど薄くなるようにコートすることにより、原料ガスの導入側での酸化セリウムの存在割合が高く、改質ガスの排出側での酸化セリウムの存在割合が低くなるようにしている。

【0033】これにより、第1の実施の形態と同様の作用効果を得ることができる。

【0034】次に、本発明の第4の実施の形態の燃料改質装置を、図5に基づいて説明する。第4の実施の形態は、図3に示した第2の実施の形態と構造は同じであるが、第1～第3ハニカム触媒4、5、6それぞれの内部構造を第3の実施の形態のようにした点が異なっている。

【0035】つまり、第1～第3ハニカム触媒4、5、6それぞれは、ハニカム触媒担体にパラジウム系触媒をコートし、さらにその表面に酸素吸蔵金属材料である酸化セリウムをコートした構造である。そして、原料ガスの導入側での酸化セリウムの存在割合が高く、改質ガスの排出側での酸化セリウムの存在割合が低くなるように調整するために、第1ハニカム触媒4では酸化セリウムのコートの塗膜厚を第3ハニカム触媒6のものよりも厚くし、第2ハニカム触媒5では、第1、第3ハニカム触媒4、6の中間の塗膜厚としている。

【0036】これにより、第2の実施の形態と同様の作用効果を得ることができる。

【0037】なお、上記の第2、第4の実施の形態におけるハニカム触媒4、5、6の段数は3段に限定されることはなく、2段、あるいは4段以上であってもよい。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施の形態の系統図。

【図2】上記の実施の形態の作用を説明する説明図。

【図3】本発明の第2の実施の形態の系統図。

【図4】本発明の第3の実施の形態の系統図。

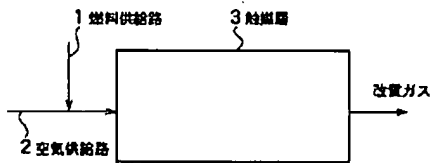
【図5】本発明の第4の実施の形態の系統図。

【符号の説明】

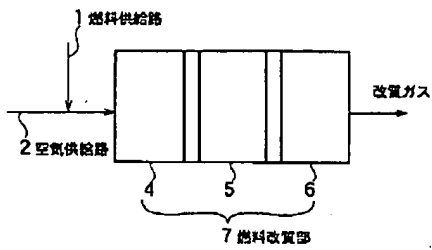
- 1 燃料供給路
2 空気供給路
3 触媒層

- 4 第1ハニカム触媒
5 第2ハニカム触媒
6 第3ハニカム触媒
7 燃料改質部

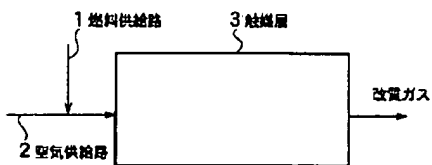
【図1】



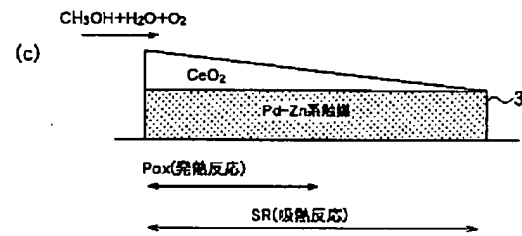
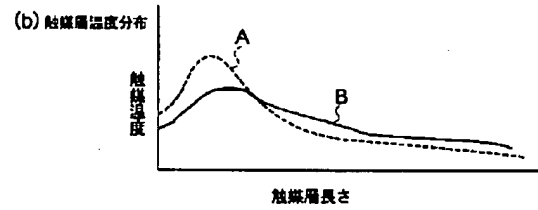
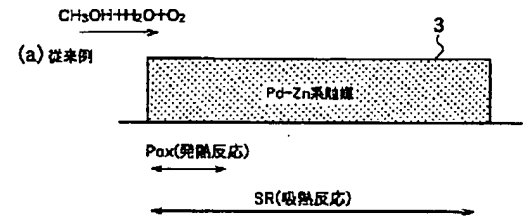
【図3】



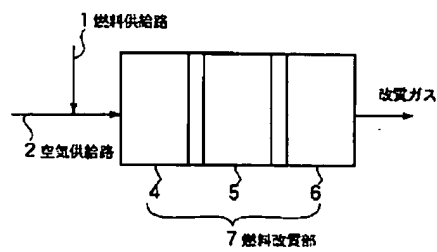
【図4】



【図2】



【図5】



フロントページの続き

Fターム(参考) 4G040 EA02 EA03 EA06 EA07 EC01
EC03 EC04 EC07
4G069 AA03 AA08 BA05B BB04A
BB06A BB06B BC35B BC43A
BC43B BC51B BC72B CC17
CC32 DA06 EA19 EE09 FA01
FA02 FC08
5H026 AA06
5H027 AA02 AA04 AA06 BA01

* NOTICES *

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

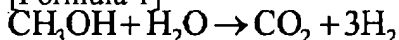
[Field of the Invention] this invention -- fuels, such as a hydrocarbon and a methanol, -- reforming -- hydrogen -- it is related with the fuel reformer suitable for manufacture of the fuel gas of fuel cells, such as a polymer electrolyte fuel cell and a phosphoric acid fuel cell, in detail about the fuel reformer for manufacturing rich reformed gas.

[0002]

[Description of the Prior Art] general -- the hydrogen from the hydrocarbon of a methanol and others, and water -- in order to manufacture rich reformed gas, the steam-reforming reaction shown with the following reaction formulas 1 is used.

[0003]

[Formula 1]

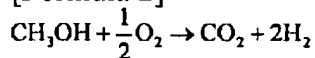


Since this steam-reforming reaction is endothermic reaction, it must heat by having to form a burner, a heater, etc. in a fuel reformer, and must supply a heating value required for a reforming reaction.

[0004] Although applying such a fuel reformer to the system in consideration of a mounted mold fuel cell in recent years is examined, the starting nature of a fuel reformer, responsibility, and miniaturization have been a big technical problem. Autothermal reforming which makes the steam-reforming reaction of the reaction formula 1 which is endothermic reaction, and the partial oxidation reaction of the following reaction formula 2 which is exothermic reaction perform to coincidence as an effective method which solves it is studied.

[0005]

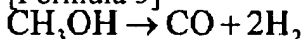
[Formula 2]



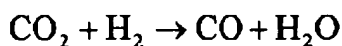
However, when supplying a fuel, water, air, or oxygen to a reforming catalyst and making the above-mentioned autothermal reforming perform, since it is quick compared with the reaction rate of the steam-reforming reaction of a reaction formula 1, the reaction rate of the partial oxidation reaction of a reaction formula 2 is the installation side of the fuel gas of a catalyst bed, and a hot field will exist. And in the elevated-temperature field in this catalyst bed, when the decomposition reaction of the following reaction formula 3 and the reverse water gas shift reaction of a reaction formula 4 occur, carbon monoxide (CO) concentration will become high.

[0006]

[Formula 3]



[Formula 4]



It is necessary to hold down discharge CO concentration to dozens of ppm or less in a polymer electrolyte fuel cell, and to stop it to 1% or less in a phosphoric acid fuel cell. For this reason, in order to apply the fuel reformer mentioned above as fuel manufacturing installations, such as a phosphoric acid fuel cell, the problem that it is necessary to make CO stripper large-sized will arise.

[0007]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] Since it was necessary to supply a heating value required for the endothermic reaction from the outside in the case of the fuel reformer to which only the steam-reforming reaction of a reaction formula 1 is made to perform as mentioned above, in order to have applied as a fuel manufacturing installation of a mounted mold fuel cell, there was a trouble that correspondence was difficult, in respect of a miniaturization and high-performance-izing.

[0008] Moreover, although the fuel reformer which performs autothermal reforming mentioned above was promising, as mentioned above, the hot field occurred in the fuel gas installation side of a reforming catalyst, carbon monoxide concentration became high in the field, and there was a trouble which needs large-sized CO stripper.

[0009] It was made in order that this invention might solve such a Prior-art-technical problem, there are few unreacted lipobiolite ghosts and the amount of generation of a carbon monoxide can be stopped low, and as the result, when including in a fuel cell system, it aims at offering the fuel reformer which can carry out and carry out [high performance]-izing of the whole system to a compact.

[0010]

[Means for Solving the Problem] fuel gas, a steam, and oxygen to the reforming reaction which invention of claim 1 holds the fuel reforming catalyst which promotes the reforming reaction of fuel gas, and is supplied -- hydrogen -- it is the fuel reformer which manufactures rich reformed gas, and it adjusts so that the side which introduces said fuel gas may increase more than the side to which the abundance of the metallic-oxide ingredient in it discharges said reformed gas to said reforming catalyst.

[0011] In the fuel reformer of claim 1, invention of claim 2 makes said fuel reforming catalyst a monolith type, and it mixes said metallic-oxide ingredient so that the direction of the side which introduces fuel gas rather than the discharge side of reformed gas may increase.

[0012] In the fuel reformer of claim 1, invention of claim 3 makes said fuel reforming catalyst a monolith type, and the reforming catalyst from which the mixing rate of said metallic-oxide ingredient differs arranges it in order with many mixing rates of said metallic-oxide ingredient to the side which discharges reformed gas from the side which introduces fuel gas for two or more sorts of monolith type catalysts which a coat is carried out to catalyst support and change.

[0013] fuel gas, a steam, and oxygen to the reforming reaction which invention of claim 4 holds the fuel reforming catalyst which promotes the reforming reaction of fuel gas, and is supplied -- hydrogen -- it is the fuel reformer which manufactures rich reformed gas, and the direction of the side which introduces said fuel gas into the front face of said reforming catalyst by which made said fuel reforming catalyst the monolith type, and the coat was carried out to catalyst support rather than the side which discharges said reformed gas for a metallic-oxide ingredient carries out a coat so that abundance may increase.

[0014] In the fuel reformer of claim 4, the metallic-oxide ingredient of an amount which is different on the front face of the reforming catalyst which carried out the coat to said catalyst support arranges invention of claim 5 in order with much abundance of said metallic-oxide ingredient to the side which discharges reformed gas from the side which introduces fuel gas for two or more sorts of monolith type catalysts by which the coat was carried out.

[0015] Invention of claim 6 uses said metallic-oxide ingredient as an oxygen occlusion ingredient in the fuel reformer of claims 1-5.

[0016] Invention of claim 7 uses said oxygen occlusion ingredient as the multiple oxide containing cerium oxide CeO₂ or Cerium Ce in the fuel reformer of claim 6.

[0017]

[Effect of the Invention] making a steam-reforming reaction and a partial oxidation reaction cause under

an operation of a fuel reforming catalyst in the fuel reformer of invention of claim 1-7 to the fuel gas, the steam, and oxygen which are supplied -- hydrogen -- rich reformed gas is manufactured.

[0018] And by having adjusted to the reforming catalyst so that the side which introduces fuel gas might increase more than the side to which the abundance of the metallic-oxide ingredient in it discharges reformed gas, the partial oxidation reaction by the side of installation of fuel gas can be delayed, the rapid temperature rise in the part can be suppressed, and carbon monoxide concentration can be reduced.

[0019] Furthermore, by using as the multiple oxide containing the oxygen occlusion ingredient CeO_2 , for example, cerium oxide, or Cerium Ce the metallic-oxide ingredient which mixes in a reforming catalyst or carries out a coat to the front face, occlusion of a part of oxygen which is the installation side of fuel gas and was introduced can be carried out, a partial oxidation reaction can be delayed, the rapid temperature rise in the part can be suppressed effectively, and carbon monoxide concentration can be reduced.

[0020]

[Embodiment of the Invention] Hereafter, the gestalt of operation of this invention is explained in full detail based on drawing. Drawing 1 shows the fuel reformer of the gestalt of operation of the 1st of this invention. The fuel reformer of the gestalt of this operation consists of a fuel-supply way 1 to which the mixed steam which made a methanol and water mix and evaporate is supplied, an air supply way 2 to which the air for fuel oxidization (oxygen) is supplied, and a catalyst bed 3 with which a palladium system catalyst and the cerium oxide CeO_2 as an oxygen occlusion ingredient which is a metallic-oxide ingredient were filled up. And it is mixed with the air from the air supply way 2, the mixed steam of the meta-note from the fuel-supply way 1 and water is made into material gas, and the steam-reforming reaction and partial oxidation reaction in a catalyst bed 3 are presented with it.

[0021] The palladium system catalyst with which the catalyst bed 3 was filled up is adjusted by drying [sink them in and] and calcinating a palladium nitrate and zinc nitrate to a heat-resistant high zirconium dioxide. Mixed filling of a palladium system catalyst and the cerium oxide is carried out to the catalyst bed 3 by the material gas installation side so that the abundance of cerium oxide may become high rather than a reformed gas discharge side.

[0022] Since the material gas installation side of a catalyst bed 3 has by this the quick partial oxidation reaction which is exothermic reaction with the conventional catalyst, occlusion of a part of oxygen with which it is introduced in the case of the gestalt of this operation that the elevated-temperature field extreme in the narrow range was generated is carried out to cerium oxide, and the abundance of a reforming catalyst is a raw material installation side, since it is few, a partial oxidation reaction can be delayed, and an extreme elevated-temperature field is not produced in the narrow range. Thereby, the concentration of the carbon monoxide in the reformed gas to generate can be stopped low.

[0023] Drawing 2 (a) shows the conventional fuel reformer. In the case of the conventional fuel reformer, the metallic-oxide ingredient is not mixed only by the reforming catalyst (palladium Pb-zinc Zn system catalyst). And the reforming catalyst is made into the same amount in each part in alignment with the flow of the material gas in a catalyst bed 3.

[0024] As shown in drawing 2 (b), in the case of such structure of the conventional example, the abundance of a reforming catalyst is uniform in each part of a catalyst bed, and since the metallic-oxide ingredient is not mixed, it is the installation side of material gas ($\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O} + \text{O}_2$), a partial oxidation reaction (Pox: exothermic reaction) occurs rapidly and a steam-reforming reaction (SR: endothermic reaction) occurs comparatively gently, the temperature distribution within a catalyst bed 3 become like Curve A.

[0025] On the other hand, since in the case of the gestalt of this operation cerium oxide was mixed to the palladium Pb-zinc Zn system catalyst as shown in drawing 2 (c), it is the installation side of material gas and the abundance was moreover made [many], and it is the discharge side of reformed gas and lessened As Curve B shows to this drawing (b), are the installation side of the material gas of a catalyst bed 3, and it stops that a partial oxidation reaction (Pox) occurs rapidly. It can control so that a partial oxidation reaction occurs in the larger range, and a temperature rise can be widely carried out to the

downstream in a catalyst bed 3 (discharge side of reformed gas), and the steam-reforming reaction can also be promoted in the large range.

[0026] And the fuel cell structure of a system which it becomes unnecessary to be able to reduce CO concentration of reformed gas effectively and to prepare a large-sized CO stripper in the latter part of the fuel reformer concerned by this, and makes this a fuel supply system is miniaturizable.

[0027] Next, the fuel reformer of the gestalt of operation of the 2nd of this invention is explained based on drawing 3. The fuel reformer of the gestalt of the 2nd operation consists of the fuel reforming sections 7 which held the 1st honeycomb catalyst 4 to which the coat of the same fuel-supply way 1 as the gestalt of the 1st operation and the air supply way 2 which were shown in drawing 1, and a palladium system catalyst and cerium oxide was carried out, the 2nd honeycomb catalyst 5, and the 3rd honeycomb catalyst 6.

[0028] The 1st honeycomb catalyst 4 of the fuel reforming section 7, the 2nd honeycomb catalyst 5, and the 3rd honeycomb catalyst 6 are the structures which all carried out the coat of the mixture of a palladium system catalyst and the cerium oxide which is an oxygen occlusion metallic material to honeycomb catalyst support.

[0029] It adjusted to the palladium system catalyst by drying [sink them in and] and calcinating a palladium nitrate and zinc nitrate to a heat-resistant high zirconium dioxide. And the coat of the mixture of the suitable rate of this palladium system catalyst and cerium oxide was carried out to honeycomb catalyst support, and the honeycomb catalyst was manufactured. moreover, the 1st, 2nd, and 3rd honeycomb catalyst 4, 5, and 6 -- each has changed the mixed rate of a palladium system catalyst and cerium oxide. That is, the mixed rate of cerium oxide of the 1st honeycomb catalyst 4 by the side of installation of material gas is high, and the mixed rate of cerium oxide is made for the honeycomb catalyst by the side of discharge of reformed gas to become low.

[0030] Even if it is in the fuel reformer of the gestalt of this 2nd operation, the same operation effectiveness as the gestalt of the 1st operation shown in drawing 1 is done so. Namely, to a palladium Pb-zinc Zn system catalyst, since it is the installation side of material gas, and there are many mixed rates, they are the discharge sides of reformed gas and there are, cerium oxide [few] It can stop that a partial oxidation reaction (Pox) occurs rapidly, it can be controlled so that a partial oxidation reaction occurs in the larger range, and it can carry out [it is the installation side of the material gas of the fuel reforming section 7, and] a temperature rise widely to the downstream in the fuel reforming section 7, and a steam-reforming reaction can also be promoted in the large range. And the fuel cell structure of a system which it becomes unnecessary to be able to reduce CO concentration of reformed gas effectively and to prepare large-sized CO stripper in the latter part of the fuel reformer concerned by this, and makes this a fuel supply system is miniaturizable.

[0031] Next, the fuel reformer of the gestalt of operation of the 3rd of this invention is explained based on drawing 4. The gestalt of the 3rd operation has the description in the structure of a catalyst bed 3. This catalyst bed 3 is a honeycomb catalyst, and is the structure which carried out the coat of the palladium system catalyst to honeycomb catalyst support, and carried out the coat of the cerium oxide which is an oxygen occlusion metallic material to that front face further.

[0032] It adjusted to the palladium system catalyst by drying [sink them in and] and calcinating a palladium nitrate and zinc nitrate to a heat-resistant high zirconium dioxide. Moreover, this honeycomb catalyst layer 3 has the high abundance of the cerium oxide by the side of installation of material gas by carrying out a coat at the front face of the uniform palladium system catalyst of a paint film so that it may be thick in the installation side of material gas and the discharge side of reformed gas may become thin about the paint film of cerium oxide, and he is trying for the abundance of the cerium oxide by the side of discharge of reformed gas to become low.

[0033] Thereby, the same operation effectiveness as the gestalt of the 1st operation can be acquired.

[0034] Next, the fuel reformer of the gestalt of operation of the 4th of this invention is explained based on drawing 5. although the gestalt and structure of the 2nd operation which showed the gestalt of the 4th operation in drawing 3 are the same -- the 1st - the 3rd honeycomb catalyst 4, 5, and 6 -- the points carried out like the gestalt of the 3rd operation of each internal structure differ.

[0035] that is, the 1st - the 3rd honeycomb catalyst 4, 5, and 6 -- each is the structure which carried out the coat of the palladium system catalyst to honeycomb catalyst support, and carried out the coat of the cerium oxide which is an oxygen occlusion metallic material to the front face further. And the abundance of the cerium oxide by the side of installation of material gas is high, and in order to adjust so that the abundance of the cerium oxide by the side of discharge of reformed gas may become low, in the 1st honeycomb catalyst 4, film thickness of the coat of cerium oxide is made thicker than the thing of the 3rd honeycomb catalyst 6, and it is considering as the middle film thickness of the 1st and 3rd honeycomb catalyst 4 and 6 in the 2nd honeycomb catalyst 5.

[0036] Thereby, the same operation effectiveness as the gestalt of the 2nd operation can be acquired.

[0037] In addition, the number of stages of the honeycomb catalysts 4, 5, and 6 in the above 2nd and the gestalt of the 4th operation is not limited to three steps, and its **** is also good in two steps or four steps or more.

[Translation done.]

[Previous Doc](#) [Next Doc](#) [Go to Doc#](#)
[First Hit](#)



Generate Collection

L4: Entry 38 of 77

File: DWPI

Dec 18, 2001

DERWENT-ACC-NO: 2002-211268

DERWENT-WEEK: 200227

COPYRIGHT 2005 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Fuel reformer for polymer fuel cell, varies amount of metallic oxide catalyst such that heating gas injection amount is more than reformed gas ejection amount

PATENT-ASSIGNEE:

ASSIGNEE

CODE

NISSAN MOTOR CO LTD

NSMO

PRIORITY-DATA: 2000JP-0165093 (June 1, 2000)

Search Selected

Search All

Clear

PATENT-FAMILY:

PUB-NO

PUB-DATE

LANGUAGE

PAGES

MAIN-IPC



JP 2001348203 A

December 18, 2001

006

C01B003/32

APPLICATION-DATA:

PUB-NO

APPL-DATE

APPL-NO

DESCRIPTOR

~~Search Form~~

June 1, 2000

2000JP-0165093

Search ResultsINT-CL (IPC): B01 J 23/60; C01 B 3/32; C01 B 3/40; H01 M 8/06; H01 M 8/10~~Help~~**User Searches**~~Preferences~~ PUB-NO: JP2001348203A~~Basic~~ ABSTRACT:~~Logout~~

NOVELTY - The amount of metallic oxide catalyst is varied, such that the injection amount of heating gas is more than the ejection amount of reformed gas.

USE - For producing hydrogen-rich reformed gas from fuels such as hydrocarbon and methanol in the polymer fuel cells and phosphoric acid fuel cells.

ADVANTAGE - Delays partial oxidation reaction. Reduces temperature rise and reduces the concentration of carbon monoxide.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The figure explains the fuel reforming process.
(Drawing includes non-English language text).

CHOSEN-DRAWING: Dwg.2/5

TITLE-TERMS: FUEL REFORM POLYMER FUEL CELL VARY AMOUNT METALLIC OXIDE CATALYST HEAT GAS INJECTION AMOUNT MORE REFORM GAS EJECT AMOUNT

DERWENT-CLASS: E36 H04 H06 L03 X16

CPI-CODES: E31-A02; H04-E06; H04-F02E; H06-A03; L03-E04A2; L03-E04E; N02-F02; N03-A; N03-F;

EPI-CODES: X16-C01C; X16-C04;

CHEMICAL-CODES:

Chemical Indexing M3 *01*

Fragmentation Code

C101 C550 C810 M411 M720 M904 M905 N441 Q413 Q417

Q454 R013

Specific Compounds

01532K 01532P

Registry Numbers

1532P 1532U

Chemical Indexing M3 *02*

Fragmentation Code

A758 A940 C108 C550 C730 C801 C802 C803 C804 C805

C807 M411 M730 M782 M904 M905 M910 Q421

Specific Compounds

01506K 01506C 01506M

Registry Numbers

1506S 1506U

Chemical Indexing M3 *03*

Fragmentation Code

A758 C810 M411 M730 M782 M904 M905 Q421

Specific Compounds

19499K 19499C 19499M

Chemical Indexing M3 *04*

Fragmentation Code

A546 C810 M411 M730 M782 M904 M905 Q421

Specific Compounds

03031K 03031C 03031M

Chemical Indexing M3 *05*

Fragmentation Code

A430 C810 M411 M730 M782 M904 M905 Q421

Specific Compounds

03035K 03035C 03035M

Chemical Indexing M3 *06*

Fragmentation Code

H4 H401 H481 H8 M210 M211 M272 M281 M320 M416

M620 M730 M904 M905 M910

Specific Compounds

00270K 00270S

Registry Numbers

0270S 0270U

UNLINKED-DERWENT-REGISTRY-NUMBERS: 0270S; 0270U ; 1506S ; 1506U ; 1532P ; 1532U

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C2002-064884

Non-CPI Secondary Accession Numbers: N2002-161378

[Previous Doc](#) [Next Doc](#) [Go to Doc#](#)